

Translation in part of Cited Reference 3 (WO 02/102892)

ETHYLENE/HEXAFLUOROPROPYLENE ELASTOMER COMPOSITION

5

Page 7, lines 17 to 28

To the composition of the present invention, a filler, a processing aid and an antioxidant can be added when necessary.

Examples of filler are metal oxide such as magnesium
oxide, calcium oxide, zinc oxide, lead oxide, titanium oxide, ferric oxide,
silver oxide, chromic oxide, bismuth oxide, silicon oxide, aluminum
oxide and copper oxide; metal hydroxide such as magnesium
hydroxide, aluminum hydroxide and calcium hydroxide; carbonate
such as magnesium carbonate, aluminum carbonate, calcium
carbonate and barium carbonate; sulfide such as molybdenum
disulfide, ferric sulfide, copper sulfide, sulfate such as calcium sulfate,
aluminum sulfate and barium sulfate; silicate such as magnesium
silicate, calcium meta silicate, sodium silicate and aluminum silicate;
hydrotalcite, lithopone (mixture of zinc sulfide and barium sulfate),
diatomite, graphite, carbon black, lampblack, MT carbon black, carbon
fluoride, calcium fluoride, coke, fluoride-containing resin powder or
fiber and carbon fiber.

25 Page 11, lines 20 and 21

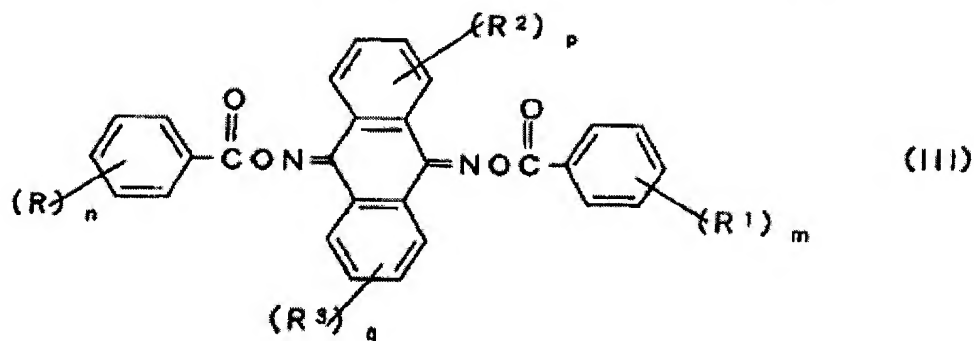
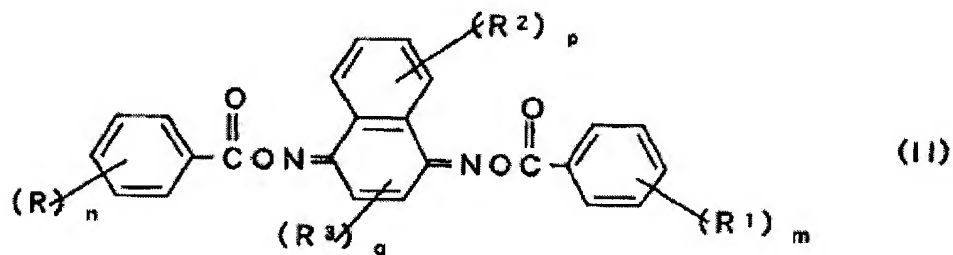
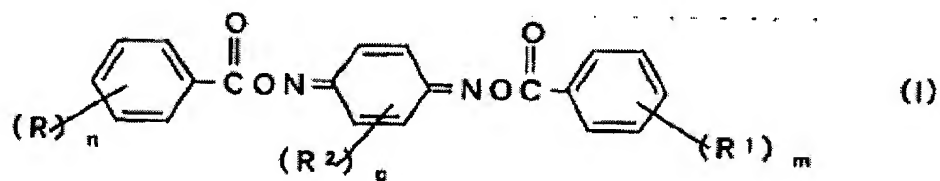
For example, O-ring, seal material, hose, tube, diaphragm, roll, lining and coating of the region required in anti plasma such as

CVD equipment, etching equipment, oxidation/diffusion equipment, sputtering equipment, ashing equipment, ion implant equipment and exhaust equipment;






CLAIMS

1. An ethylene/hexafluoropropylene elastomer composition which comprises an ethylene/hexafluoropropylene, a peroxide vulcanizing agent, and a vulcanization aid capable of generating an (un)saturated benzoyloxy radical.

2. The composition of Claim 1, wherein said vulcanization aid is benzoylquinonedioxime compound which is represented by the general formula (I), (II) or (III):



wherein R, R¹, R² and R³ represent an alkyl group, wherein carbon number is 1 to 4, an alkoxy group or a hydrogen atom, respectively; n and m are an integer of 0 to 5, respectively; p and q are an integer of 0 to 5, respectively.

ETHYLENE/HEXAFLUOROPROPYLENE ELASTOMER COMPOSITION**Publication number:** WO02102892**Publication date:** 2002-12-27**Inventor:** SAITO HIDEYA (JP); OTSUKA MASAO (JP); MORIKAWA TATSUYA (JP); OTANI MITSUHIRO (JP)**Applicant:** DAIKIN IND LTD (JP); SAITO HIDEYA (JP); OTSUKA MASAO (JP); MORIKAWA TATSUYA (JP); OTANI MITSUHIRO (JP)**Classification:****- International:** C08K5/33; C09K3/10; C08K5/00; C09K3/10; (IPC1-7): C08L23/08; C08K5/53; C08L27/20**- European:** C08K5/33; C09K3/10D6**Application number:** WO2002JP05577 20020606**Priority number(s):** JP20010181982 20010615**Cited documents:** JP10231386
 EP0422960
 JP2281062
 JP11246717
 JP10120826
more >>**Report a data error here****Abstract of WO02102892**

An ethylene/hexafluoropropylene elastomer composition which comprises an ethylene/hexafluoropropylene elastomer, a peroxide vulcanizing agent, and a vulcanization aid capable of generating an (un)saturated benzoyloxy radical. The vulcanization aid is, for example, p,p'-benzoylquinone dioxime. In the composition, the ethylene/hexafluoropropylene elastomer shows significantly improved suitability for vulcanization with the peroxide. Even when the composition contains a lowly reinforcing filler, no foaming is observed therein.

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

(19) 日本国特許庁 (JP)

再公表特許(A1)

(11) 国際公開番号

W02002/102892

発行日 平成16年9月30日 (2004. 9. 30)

(43) 国際公開日 平成14年12月27日 (2002. 12. 27)

(51) Int. Cl.⁷

F 1

CO8L 23/08
CO8K 3/34
CO8K 5/14
CO8K 5/33
CO8K 5/3477

CO8L 23/08
CO8K 3/34
CO8K 5/14
CO8K 5/33
CO8K 5/3477

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 19 頁) 最終頁に続く

出願番号	特願2003-506359 (P2003-506359)	(71) 出願人	000002853
(21) 国際出願番号	PCT/JP2002/005577		ダイキン工業株式会社
(22) 国際出願日	平成14年6月6日 (2002.6.6)		大阪府大阪市北区中崎西2丁目4番12号
(31) 優先権主張番号	特願2001-181982 (P2001-181982)		梅田センタービル
(32) 優先日	平成13年6月15日 (2001.6.15)	(74) 代理人	100065226
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		弁理士 朝日奈 宗太
(81) 指定国	EP (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR), CN, JP, US	(74) 代理人	100098257
			弁理士 佐木 啓二
		(72) 発明者	齋藤 秀哉
			大阪府摂津市西一津屋1番1号 ダイキン工業株式会社淀川製作所内
		(72) 発明者	大塚 正男
			大阪府摂津市西一津屋1番1号 ダイキン工業株式会社淀川製作所内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 エチレン-ヘキサフルオロプロピレン系エラストマー組成物

(57) 【要約】

エチレン-ヘキサフルオロプロピレン系エラストマー、パーオキサイド加硫剤、および置換又は非置換のベンゾイルオキシラジカルを発生し得る加硫助剤とからなる、エチレン-ヘキサフルオロプロピレン系エラストマー組成物。加硫助剤は、例えば、p, p'-ベンゾイルキノンジオキシムである。

この組成物は、エチレン-ヘキサフルオロプロピレン系エラストマーをパーオキサイド加硫する際の加硫性が顕著に向上し、しかも、補強性の小さな充填剤を配合した処方であっても発泡現象が観察されない組成物である。

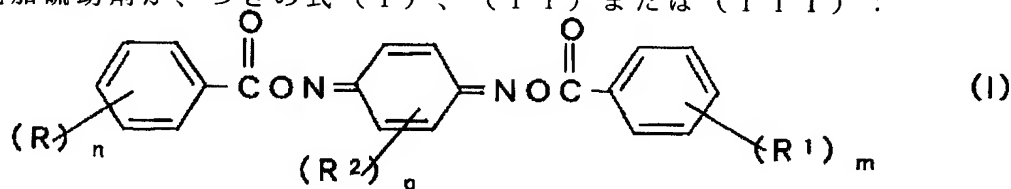
【特許請求の範囲】

【請求項 1】

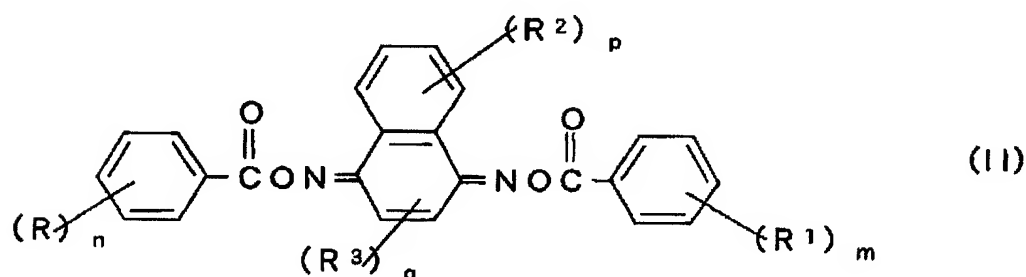
エチレンーヘキサフルオロプロピレン系エラストマー、パーオキサイド加硫剤、および置換または非置換のベンゾイルオキシラジカルを発生し得る加硫助剤とからなるエチレンーヘキサフルオロプロピレン系エラストマー組成物。

【請求項 2】

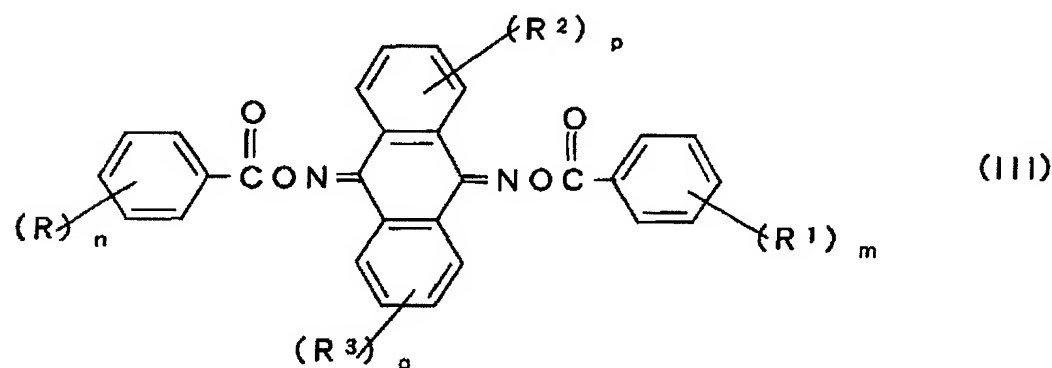
前記加硫助剤が、つぎの式 (I)、(II) または (III) :



10



20



30

(式中、R、R¹、R² および R³ は同じかまたは異なり、いずれも炭素数 1～4 のアルキル基、アルコキシ基またはハロゲン原子；n および m は同じかまたは異なり、いずれも 0～5 の整数；p および q は同じかまたは異なり、いずれも 0～4 の整数) で示される置換または非置換のジベンゾイルキノンジオキシム化合物の少なくとも 1 種である請求の範囲第 1 項記載の組成物。

【請求項 3】

前記加硫助剤が、p, p'-ジベンゾイルキノンジオキシムである請求の範囲第 2 項記載の組成物。

【請求項 4】

さらに他の加硫助剤を含む請求の範囲第 1 項記載の組成物。

40

【請求項 5】

前記他の加硫助剤が、トリアリルイソシアヌレートである請求の範囲第 4 項記載の組成物。

【請求項 6】

さらに補強性の小さい充填材が配合されている請求の範囲第 1 項記載の組成物。

【請求項 7】

前記補強性の小さい充填材が、メタケイ酸カルシウム、硫酸バリウム、ケイ酸マグネシウムおよびケイ酸アルミニウムからなる群から選択される少なくとも 1 種である請求の範囲第 6 項記載の組成物。

50

【請求項 8】

前記エチレン-ヘキサフルオロプロピレン系エラストマーが、エチレンとヘキサフルオロプロピレンとの共重合体またはエチレンとヘキサフルオロプロピレンと他の含フッ素オレフィンとの共重合体である請求の範囲第 1 項記載の組成物。

【請求項 9】

前記他の含フッ素オレフィンが、テトラフルオロエチレン、フッ化ビニリデン、クロロトリフルオロエチレン、トリフルオロエチレン、ペンタフルオロプロピレンおよびパーフルオロ（アルキルビニルエーテル）のモノマーからなる群から選択される少なくとも 1 種である請求の範囲第 8 項記載の組成物。

【発明の詳細な説明】

10

技術分野

本発明は、エチレン（E）とヘキサフルオロプロピレン（HFP）とを必須の構成単位とする E-HFP 系エラストマーをパーオキサイド加硫系で加硫する場合、加硫性および加工性、特に発泡防止性が改善された組成物に関する。

この E-HFP 系エラストマーの組成物をパーオキサイド加硫して得られる加硫物は耐アミン性に優れており、自動車用オイル、特にエンジンオイルやミッションオイル、デファレンシャルオイルなどのオイルシール用の材料として好適である。

背景技術

エチレン（E）とヘキサフルオロプロピレン（HFP）との共重合体はエラストマー性を示し、他のフッ素樹脂やエラストマーと同様に、耐熱性、耐油性、耐薬品性（特に、耐アルカリ性など）に優れている。とりわけ、耐アミン性や耐油性に優れていることから自動車用オイルシール用の材料として期待されている。また、電気絶縁性が高く、誘電正接や誘電率が小さく、周波数依存性も小さいなど、電氣的にも有利な特性を有しており、こうした電気電子部品の分野の用途も期待できる。

20

こうした E-HFP 系エラストマーの加硫方法としては、有機過酸化物を加硫剤として用いる、いわゆるパーオキサイド加硫法が最も頻繁に用いられている。パーオキサイド加硫させる場合、一般に加硫性を向上させる目的から、トリアリルイソシアヌレート（TAIC）などの加硫助剤を共存させて加硫させることが通常行なわれている（たとえば W O 9 4 / 2 4 1 7 5 号パンフレット）。また、種々の用途での要求特性に対応するため、実用的な配合設計ではカーボンブラックやシリカ、メタケイ酸カルシウムなどの充填材を配合

30

することが要求されることがある。しかし、TAIC を加硫助剤として使用する配合処方の中には必ずしも十分な加硫性が発現せず、そうした現象は、特にメタケイ酸カルシウムや硫酸バリウムなどの補強性の小さな充填材が配合されている処方では顕著に認められ、加硫度が上がらないため、プレス加硫後の加硫物に発泡痕が見受けられ、シール材などとして使用できないという問題がある。

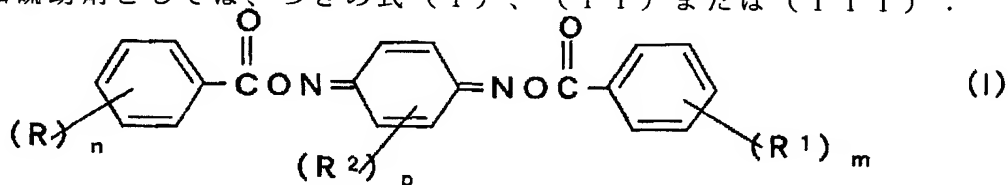
発明の開示

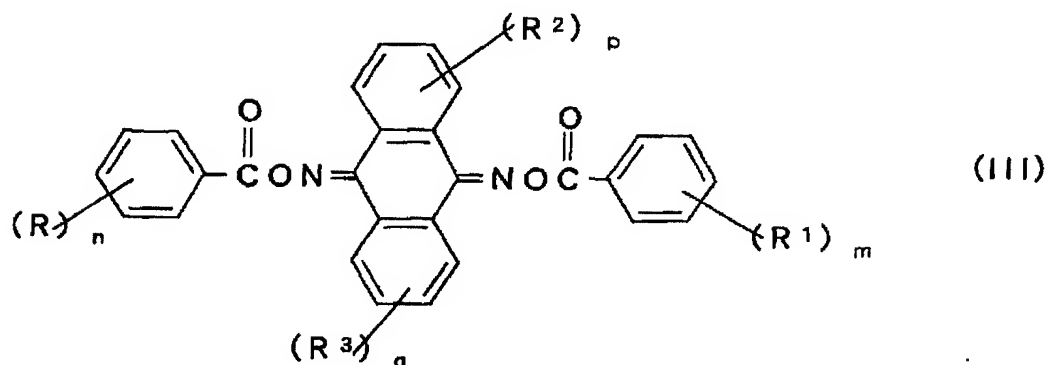
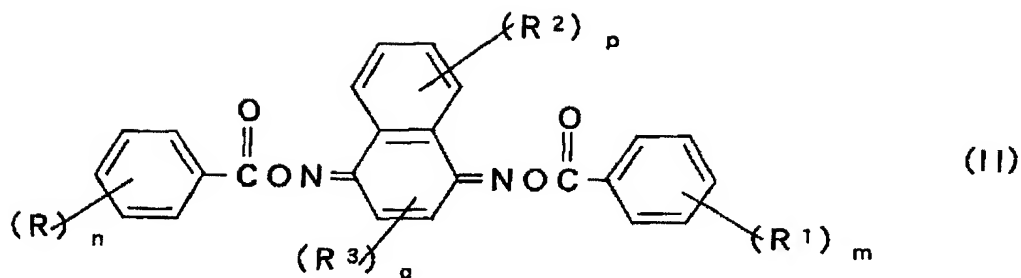
本発明は、E-HFP 系エラストマーをパーオキサイド加硫する際に、加硫性が著しく向上し、しかも補強性の小さな充填材を配合した処方であっても発泡現象が観察されない組成物を提供することを目的とする。

すなわち本発明は、E-HFP 系エラストマー、パーオキサイド加硫剤、および置換または非置換のベンゾイルオキシラジカルを発生し得る加硫助剤とからなる E-HFP 系エラストマー組成物に関する。

40

前記加硫助剤としては、つぎの式（I）、（II）または（III）：





10

(式中、 R 、 R^1 、 R^2 および R^3 は同じかまたは異なり、いずれも炭素数 1～4 のアルキル基、アルコキシ基またはハロゲン原子； n および m は同じかまたは異なり、いずれも 0～5 の整数； p および q は同じかまたは異なり、いずれも 0～4 の整数) で示される置換または非置換のジベンゾイルキノンジオキシム化合物の少なくとも 1 種、特に p 、 p' -ジベンゾイルキノンジオキシムが好適に使用できる。

本発明の組成物においては、さらにトリアリルイソシアヌレートなどの他の加硫助剤を含んでいてもよい。

本発明の組成物は、特にメタケイ酸カルシウム、硫酸バリウム、ケイ酸マグネシウムおよびケイ酸アルミニウムからなる群から選択される少なくとも 1 種などの補強性の小さい充填材が配合されている処方で顕著な効果、特に発泡の抑制効果が達成される。

前記 E-HFP 系エラストマーとしては、エチレンとヘキサフルオロプロピレンとの共重合体またはエチレンとヘキサフルオロプロピレンと他の含フッ素オレフィンとの共重合体が好ましい。他の含フッ素オレフィンとしては、テトラフルオロエチレン、フッ化ビニリデン、クロロトリフルオロエチレン、トリフルオロエチレン、ペンタフルオロプロピレンおよびパーフルオロ（アルキルビニルエーテル）のモノマーからなる群から選択される少なくとも 1 種が好適にあげられる。

発明を実施するための最良の形態

本発明において、使用する E-HFP 系エラストマーは種々の重合法で製造できるが、ラジカル重合法が一般的である。

たとえばエラストマー中のモノマー組成はモル比で E/HFP が 90/10～50/50、好ましくは 70/30～50/50 である。これらに共重合可能な他の含フッ素オレフィンを含有量が 0～15 モル%、好ましくは 0～10 モル% となるように共重合してもよい。

エチレンおよび HFP と共重合可能な含フッ素オレフィンとしては、たとえばテトラフルオロエチレン (TFE)、フッ化ビニリデン (VdF)、クロロトリフルオロエチレン (CTFE)、トリフルオロエチレン、ペンタフルオロプロピレンおよびパーフルオロ（アルキルビニルエーテル）(PAVE) のモノマーからなる群から選択される少なくとも 1 種が好ましくあげられ、特に生産性の向上が図れる点から TFE、CTFE が好ましい。しかし、得られる共重合体はエラストマー性を呈することが必要である。

ラジカル重合開始剤としては、有機過酸化物または過硫酸塩、あるいはこれらと還元剤とを組み合わせたレドックス開始剤が好適である。

重合法としては乳化重合法が好ましく、特に 40℃ までの重合温度で重合反応を行なう低

20

30

40

50

温重合法が好ましい。この低温重合法で得られる E-HFP 系エラストマーは分岐が少なく、したがって加工性にも優れたものである。

本発明は、こうした E-HFP 系エラストマー、パーオキサイド加硫剤および特定の加硫助剤とを含むエラストマー組成物に関する。

パーオキサイド加硫に用いる加硫剤である過酸化物としては、熱や酸化還元剤の存在下で容易にパーオキシラジカルを発生する有機系の過酸化物が好ましく使用される。具体例としては、たとえば 1, 1-ビス (t-ブチルパーオキシ) -3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン、2, 5-ジメチルヘキサ-2, 5-ジヒドロパーオキサイド、ジ-t-ブチルパーオキサイド、t-ブチルクミルパーオキサイド、ジクミルパーオキサイド、2, 5-ジメチル-2, 5-ビス (t-ブチルパーオキシ) ヘキサン、 α , α -ビス (t-ブチルパーオキシ) -p-ジイソプロピルベンゼン、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ (t-ブチルパーオキシ) -ヘキシン-3、ベンゾイルパーオキサイド、t-ブチルパーオキシベンゼン、t-ブチルパーオキシベンゾエート、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ (ベンゾイルパーオキシ) -ヘキサン、t-ブチルパーオキシマレイン酸、t-ブチルパーオキシイソプロピルカーボネート、1, 1-ビス (t-ブチルパーオキシ) 2-メチルシクロヘキサン、1, 1-ビス (t-ヘキシルパーオキシ) シクロヘキサン、1, 1-ビス (t-ブチルパーオキシ) 3, 3, 5-トリエチルシクロヘキサン、1, 1-ビス (t-ブチルパーオキシ) シクロヘキサン、1, 1-ビス (t-ブチルパーオキシ) シクロドデカン、t-ヘキシルパーオキシベンゾエート、t-ブチルパーオキシアセテート、2, 2-ビス (t-ブチルパーオキシ) ブタン、n-ブチル-4, 4-ビス (t-ブチルパーオキシ) ペンタン酸、ジ-t-ブチルパーオキシイソフタレート、2, 5-ジエチル-2, 5-ジ (ベンゾイルパーオキシ) ヘキサンなどがあげられる。これらの中でもジアルキル系、パーオキシエステル系、とくに加硫体の発泡を防止しやすい点で、t-ブチルパーオキシベンゾエート、ジクミルパーオキサイドが好ましい。

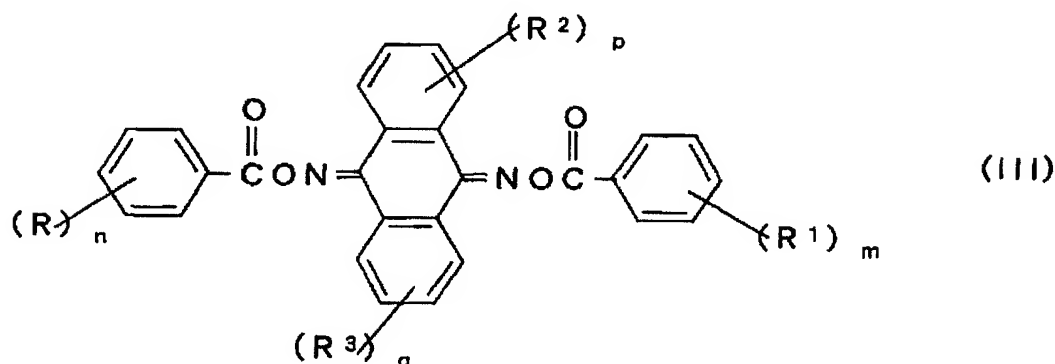
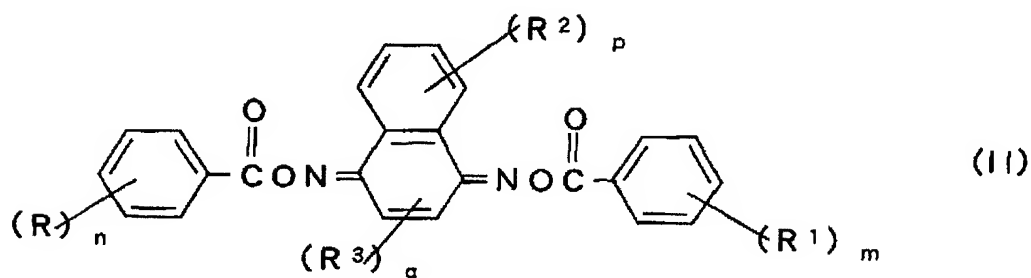
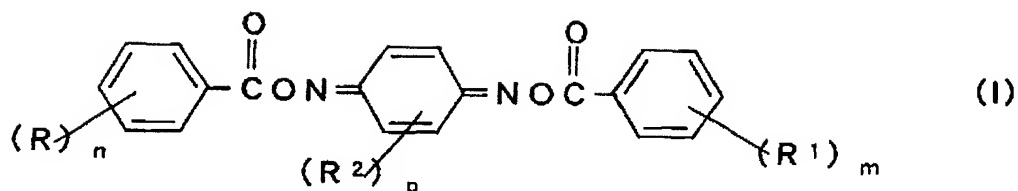
加硫剤の使用量は有機過酸化物中の活性な-O-O-結合量、分解温度などを考慮して適宜決定すればよく、通常、共重合体 100 重量部 (以下、「部」という) あたり 0.5 ~ 1.0 部、好ましくは 1.0 ~ 5 部である。

パーオキサイド加硫では、一般に加硫助剤を使用することにより、加硫が顕著に促進される。そうした加硫助剤として本発明では、置換または非置換のベンゾイルオキシラジカルを発生し得る化合物を用いる。前記加硫助剤としては、つぎの式 (I)、(II) または (III) :

10

20

30



(式中、 R 、 R^1 、 R^2 および R^3 は同じかまたは異なり、いずれも炭素数 1～4 のアルキル基、アルコキシル基またはハロゲン原子； n および m は同じかまたは異なり、いずれも 0～5 の整数； p および q は同じかまたは異なり、いずれも 0～4 の整数) で示される置換または非置換のジベンゾイルキノンジオキシム化合物の少なくとも 1 種があげられる。具体的には、たとえば p 、 p' -ジベンゾイルキノンジオキシム、ジベンゾイル-1,4-ナフタキノンジオキシムなどが例示でき、特に入手が容易であり、価格が低いという点で、 p 、 p' -ジベンゾイルキノンジオキシムが好ましい。

キノンジオキシム化合物をエチレン-プロピレン (EP) エラストマーのパーオキサイド加硫に使用すると、加硫度が上がることは知られている。その作用機構として、(1) 加硫剤である過氧化物から発生したラジカルが EP エラストマーのプロピレン単位から水素を引き抜くことにより生ずる 3 級ラジカルにキノンジオキシム化合物が反応して主鎖の分解を防止する作用機構、(2) オキシムを介した架橋反応で架橋構造を形成する作用機構が主張されている (日本ゴム協会誌、第 41 巻、第 5 号、435～441 頁、442～450 頁 (1968))。この文献ではプロピレン単位を含まないポリエチレンなどをパーオキサイド架橋しようとする逆に加硫度が低下してしまうことも報告されている。

またフッ素ゴムのパーオキサイド加硫系でキノンジオキシム化合物が添加されている例としては、TFE-プロピレン共重合体に添加した例が知られている (特公昭 49-7058 号公報)。

しかし、プロピレン単位を主成分として含まないフルオロエラストマー性共重合体のパーオキサイド加硫系でキノンジオキシム化合物を添加した例は知られていない。

かわる置換または非置換のベンゾイルラジカルを発生し得る化合物が E-HFP 系エラストマーのパーオキサイド加硫系において加硫性を特異的に向上させる理由は不明である。特に、補強性が小さい充填材を配合した処方の場合、従来 E-HFP 系エラストマーのパーオキサイド加硫に使用されていた TAIC などの他の加硫助剤で発生していた発泡現象が、置換または非置換のベンゾイルラジカルを発生し得る化合物を加硫助剤とする場合のみ現れない。

10

20

30

40

50

本発明の特定の加硫助剤の使用量は、E-HFP系エラストマー100部あたり0.2～10部、好ましくは0.5～5部である。多すぎると着色が大きくなり、少なすぎると発泡抑制効果が期待できなくなる。

本発明においては、前記特定の加硫助剤に加えて、従来公知の他の加硫助剤を使用してもよい。具体例としては、たとえばTAIC、トリアリルシアヌレート、トリアリルホルマール、トリアリルトリメリレート、N, N'-m-フェニレンビスマレイミド、ジプロパルギルテレフタレート、ジアリルフタレート、テトラアリルテレフタレートアミド、トリアリルホスフェートなどがあげられ、とくに加硫体の耐熱性が高いという点で、トリアリルイソシアヌレートが好ましい。併用量は、本願の効果を損なわない範囲で選択すればよい。

10

パーオキサイド加硫は、従来と同様に行なうことができる。たとえば、E-HFP系エラストマーと加硫剤、加硫助剤、さらには適宜混合可能な他の添加剤とをロール練り後金型に入れ加圧して1次加硫（プレス加硫）し、ついで2次加硫（オープン加硫）する方法があげられる。一般に1次加硫の条件は、温度100～200℃で、時間5～60分間、圧力2～10MPa程度の範囲から採用され、2次加硫の条件は温度150～300℃で、時間30分間～30時間程度の範囲から採用される。

本発明の組成物においては、さらに必要に応じて充填材、加工助剤、老化防止剤などを加えることができる。

20

充填材としては、たとえば酸化マグネシウム、酸化カルシウム、酸化亜鉛、酸化鉛、酸化チタン、酸化鉄、酸化銀、酸化クロム、酸化ビスマス、酸化ケイ素、酸化アルミニウム、酸化銅などの金属酸化物；水酸化マグネシウム、水酸化アルミニウム、水酸化カルシウムなどの金属水酸化物；炭酸マグネシウム、炭酸アルミニウム、炭酸カルシウム、炭酸バリウムなどの炭酸塩；二硫化モリブデン、硫化鉄、硫化銅などの金属硫化物；硫酸カルシウム、硫酸アルミニウム、硫酸バリウムなどの硫酸塩；ケイ酸マグネシウム、メタケイ酸カルシウム、ケイ酸ナトリウム、ケイ酸アルミニウムなどのケイ酸塩；そのほかハイドロタルサイト、リトポン（硫化亜鉛と硫酸バリウムの混合物）、珪藻土、グラファイト、カーボンブラック、ランプブラック、MTカーボンブラック、フッ化カーボン、フッ化カルシウム、コークス、フッ素樹脂粉末または繊維、カーボン繊維などがあげられる。

30

特に耐磨耗性、金属接着性、潤滑性の向上に寄与する点から、特開平8-27343号公報および特開平8-151565号公報に記載のモース硬度6以上の無機粉体である酸化クロム、酸化ケイ素、酸化鉄粉末；特開平7-188500号公報記載のカーボンが突き刺さったポリテトラフルオロエチレン粉末；特開昭56-151739号公報記載の充填材を充填したフッ素樹脂を主成分とする材料にて作製した繊維；カーボン繊維とフッ素樹脂を主成分とする材料の繊維；特公平5-64177号公報記載のメタケイ酸カルシウムまたはグラファイトが好ましく、さらに機械的強度および圧縮永久歪みの向上が顕著な点からカーボンブラック、酸化ケイ素が好ましい。

さらに本発明が特異的に意外な効果を発揮する処方として、充填材に補強性の小さい充填材を使用した処方（処方）があげられ、この処方において従来使用されていた加硫助剤で発生していた発泡現象が前記特定の加硫助剤を使用することにより抑制できる。ここで、補強性の小さいとは、加硫体の強度を上げる能力が低いことを意味する。

40

補強性の小さい充填材としては、メタケイ酸カルシウム、硫酸バリウム、ケイ酸マグネシウムおよびケイ酸アルミニウムからなる群から選択される少なくとも1種などがあげられる。

充填材の配合量は種類や配合目的などによって適宜選択でき、通常、エラストマー100部あたり0～100部、好ましくは10～60部である。

加工助剤としては、たとえばステアリン酸、オレイン酸、パルミチン酸、ラウリン酸などの高級脂肪酸；ステアリン酸ナトリウム、ステアリン酸亜鉛などの高級脂肪酸塩；ステアリン酸アミド、オレイン酸アミドなどの高級脂肪酸アミド；ステアリン酸エチル、ステアリン酸ブチル、オレイン酸エチル、オレイン酸ブチルなどの高級脂肪酸エステル；ステアリン酸アミンなどの高級脂肪酸アミン；エチレングリコール、グリセリン、ジエチレング

50

ルコールなどのポリオール；ワセリン、パラフィンなどの脂肪族炭化水素；そのほか石油系ワックス、シリコンオイル、低分子量ポリエチレン、低分子量ポリプロピレンなどがあげられる。

老化防止剤としては、4, 4-ビス(α , α -ジメチルベンジル)ジフェニルアミン、フェニル-1-ナフチルアミン、アルキル化ジフェニルアミン、オクチル化ジフェニルアミン、p-(p-トルエンスルホニルアミド)ジフェニルアミン、N, N'-ジ-2-ナフチル-p-フェニレンジアミン、N, N'-ジフェニル-p-フェニレンジアミン、N-フェニル-N'-イソプロピル-p-フェニレンジアミン、N-フェニル-N'-(1, 3-ジメチルブチル)-p-フェニレンジアミン、N-フェニル-N'-(3-メタクリロイルオキシ-2-ヒドロキシプロピル)-p-フェニレンジアミン、2, 2, 4-トリメチル-1, 2-ジヒドロキノリン重合体、トリス(ノニルフェニル)ホスファイトなどがあげられる。

10

本発明の組成物は、通常の金型成形のほか、押出し、トランスファー、カレンダー、ロールコート、はけ塗り、含浸などの連続成形加工法により、シート、パイプ、ロッド、チューブ、アングル、チャンネル、引布、塗布板などの成形物などに成形加工され得る。その他公知の各種成形加工法によって異形品、特殊成形品、たとえばスポンジ状ラバーなどにも成形加工され得る。また、フィルム状、テープ状の成形物に1次加工して、これを積層、張付、巻付などの2次加工によってさらに成形加工することもできる。このように成形加工された組成物は、前述のような加硫手段によって加硫物にされる。また、溶液状にて塗布、含浸、噴霧などで基材表面に適用した後加硫したり、加硫配合したフィルム状ないしシート状物にて積層して加硫接着したり、さらには加硫したフィルム状ないしシート状物を基材表面に接着積層したりすることにより加硫被膜を形成させることもでき、種々多様な加硫ゴム製品を提供できる。

20

かくして得られる加硫物は前記のとおり、優れた耐熱性、耐油性、耐アミン性、耐薬品性を有しており、自動車産業、航空機産業、半導体産業、食品産業、化学産業における各種部品に使用できる。とくに、耐熱性、耐油性、耐アミン性を活かして、オイルシール用の部品、たとえば自動車のエンジンオイル用のホースやオイルシールなどに好適である。そのほかの好適な成形品をつぎに列挙する。

一般的適用成形品：

自動車、船舶、航空機などの輸送機関における耐アミン、耐油、耐薬品、耐スチームあるいは耐候用のパッキング、O-リング、ホース、その他のシール材、ダイヤフラム、バルブ、電線被覆材に、また化学プラントにおける同様のパッキング、O-リング、シール材、ダイヤフラム、バルブ、ホース、ロール、チューブに、食品プラント機器および食品機器（家庭用品を含む）における同様のパッキング、O-リング、ホース、シール材、ベルト、ダイヤフラム、バルブ、ロール、チューブに、原子力プラント機器における同様のパッキング、O-リング、ホース、シール材、ダイヤフラム、バルブ、チューブに、一般工業部品における同様のパッキング、O-リング、ホース、シール材、ダイヤフラム、バルブ、ロール、チューブ、マンドレル、電線被覆材、フレキシブルジョイント、ベルト、ゴム板、ウェザーストリップ、PPC複写機のロールブレードなどへの用途に好適である。さらに具体的には、以下のような用途を示すことができる。

30

40

(イ) 自動車関連

本発明で得られるエラストマーは、高い耐熱性と自動車用のオイルに添加される主としてアミン系添加剤（具体的にはコハク酸イミド類、金属ジアルキルジカーバメート類）に対して優れた耐性を示し、しかもオイル自体に対しても体積変化が少ないため、自動車用オイル、たとえばオートマチックトランスミッションフルード(ATF)やエンジンオイル、デファレンシャルギヤオイルに対する各種部材や成形品として好適である。特に、ガソリン車やディーゼル車のエンジンオイルのシール材、ホース材；各種トランスミッションオイルのシール材、ホース材；各種ギヤオイルのシール材、ホース材；これらのオイルの環境を感知するためのセンサー線の被覆材などといった、オイルと接触し得るエラストマー成形品の材料として好適である。

50

より具体的には、

▲ 1 ▼ シール用途：

- ・ クランクシャフトシール、
- ・ エンジンシリンダースリーブのＯ－リング、ガスケット
- ・ ウェットシリンダースリーブのＯ－リング、ガスケット
- ・ パワーピストンパッキン、
- ・ シリンダーライナーのシール、
- ・ バルブステムのシール、
- ・ 自動変速機のフロントポンプシール、
- ・ リアアクスルピニオンシール、
- ・ ユニバーサルジョイントのガスケット、
- ・ スピードメーターのピニオンシール、
- ・ フートブレーキのピストンカップ、
- ・ トルク伝達のＯ－リング、オイルシール
- ・ 排ガス再燃焼装置のシール、
- ・ ベアリングシール、
- ・ デファレンシャルシール（ドライブピニオン用シール、サイド用シール）、
- ・ デファレンシャル用ガスケット、Ｏ－リング、
- ・ 手動変速機用オイルシール、ガスケット、Ｏ－リング、パッキン、
- ・ 自動変速機用オイルシール、ガスケット、Ｏ－リング、パッキン、
- ・ 無段変速機（ベルト式またはトロイダル式）用オイルシール、ガスケット、Ｏ－リング、
- ・ パッキン、
- ・ ホイールベアリングシール、
- ・ ラジエータのシール、ガスケット、Ｏ－リング、
- ・ オイルクーラーのシール、ガスケット、Ｏ－リング、
- ・ パワーステアリングのシール、ガスケット、Ｏ－リング

10

20

▲ 2 ▼ ホース用途：

- ・ 手動変速機用オイルホース、
- ・ 自動変速機用 A T F ホース、
- ・ 無断変速機（ベルト式またはトロイダル式）用 C V T F ホース、
- ・ E G R チューブ、
- ・ ツインキャブチューブ、
- ・ ラジエータ用ホース、
- ・ オイルクーラー用ホース、
- ・ パワーステアリング用ホース

30

▲ 3 ▼ ダイアフラム用途：

- ・ キャブレターのセンサー用ダイアフラム

▲ 4 ▼ 電装品用途：

- ・ 電線被覆材、
- ・ 絶縁材、
- ・ シース、
- ・ クーラーホース、
- ・ チューブ、
- ・ リング、
- ・ パッキン

40

▲ 5 ▼ その他の用途：

- ・ 防振ゴム（エンジンマウント、排気部など）、
 - ・ 再燃焼装置用ホース
- （ロ）化学工業関連

▲ 1 ▼ シール用途：

50

- ・化学薬品用ポンプ、流動計、配管のシール、
- ・熱交換器のシール、
- ・硫酸製造装置のガラス冷却器パッキング、
- ・農薬散布機、農薬移送ポンプのシール、
- ・ガス配管のシール、
- ・メッキ液用シール、
- ・高温真空乾燥機のパッキン、
- ・製紙用ベルトのコロシール、
- ・燃料電池のシール、
- ・風洞のジョイントシール

10

▲ 2 ▼ ロール用：

- ・耐トリクレン用ロール（繊維染色用）

▲ 3 ▼ その他の用途：

- ・耐酸ホース（濃硫酸用）、
- ・ガスクロマトグラフィー、pHメーターのチューブ結合部のパッキン、
- ・塩素ガス移送ホース、
- ・ベンゼン、トルエン貯槽の雨水ドレンホース、
- ・分析機器、理化学機器のシール、チューブ、ダイヤフラム、弁部品、
- ・スチームホース

（ハ）一般機器、機械関連

20

▲ 1 ▼ シール用途：

- ・油圧、潤滑機械のシール、
- ・ベアリングシール、
- ・乾式複写機のシール、
- ・ドライクリーニング機器の窓、その他のシール、
- ・六フッ化ウランの濃縮装置のシール、
- ・サイクロトロンのシール（真空）バルブなど、
- ・自動包装機のシール

▲ 2 ▼ その他の用途：

- ・印刷設備の印刷ロール、スクレーパー、チューブ、弁部品、
- ・塗布、塗装設備の塗布ロール、スクレーパー、チューブ、弁部品、
- ・プリンターのインキチューブ、ロール、ベルト、
- ・乾式複写機のベルト、ロール、
- ・空気中の亜硫酸ガス、塩素ガス分析用ポンプのダイヤフラム（公害測定器）、・印刷機のロール、ベルト、
- ・酸洗い用絞りロール、
- ・ドライクリーニング機器のパイプ、ホース、フレキシブルジョイント

30

（ニ）航空機関連

- ・ジェットエンジンバルブシステムシール、
- ・燃料供給用ホース、ガスケットおよびOリング、
- ・ローターティンギングシャフトシール、
- ・油圧機器のガスケット、
- ・防火壁シール

40

（ホ）船舶関連

- ・スクリュウのプロペラシャフト船尾シール、
- ・ディーゼルエンジンの吸排気用バルブシステムシール、
- ・バタフライバルブのバルブシール、
- ・バタフライ弁の軸シール

（ヘ）食品、医薬関連

- ・プレート式熱交換器のシール、

50

- ・自動販売機の電磁弁シール、
- ・薬栓、
- ・食品加工処理機用ゴム材料（たとえば熱交換器ガスケット、ダイヤフラム、Ｏーリングなどの各種シール、配管、ホース、サニタリーパッキング、バルブパッキング、充填時のピンなどの口と充填材の間のジョイントとして使用される充填用パッキング）、
- ・酒類、清涼飲料水などの製品や充填装置、食品殺菌装置、醸造装置、湯沸し器、各種自動食品販売機などのパッキング、ガスケット、チューブ、ダイヤフラム、ホース、ジョイントスリーブ

（ト）電機関連

- ・新幹線の絶縁油キャップ、
- ・液封型トランスのベンチングシール、
- ・油井ケーブルのジャケット、
- ・電機絶縁材料（たとえば各種電気機器の絶縁用スペーサ、ケーブルのジョイントや末端部などに用いる絶縁テープ、熱収縮性のチューブなどに使用される材料）、
- ・高温雰囲気中で用いられる電気および電子機器材料（たとえばモータ用口出線材料、高熱炉まわり電線材料）

10

さらに、上記で得られる成形体は、半導体、液晶パネル、プラズマディスプレイパネル、プラズマアドレス液晶パネル、フィールドエミッションディスプレイパネル、太陽電池基板などの製造装置の、たとえばＣＶＤ装置、エッチング装置、酸化拡散装置、スパッタリング装置、アッシング装置、イオン注入装置、排気装置などの耐プラズマ性の要求される部位のＯーリング、シール材、ホース、チューブ、ダイヤフラム、ロール、ライニング、コーティング；また、ウェットエッチャー、洗浄装置、薬液配管、ガス配管などの耐薬品性が要求される部位のＯーリング、シール材、ホース、チューブ、ダイヤフラム、ロール；さらにこれらの装置のノンダスト化、メタルフリーの要求される部位のＯーリング、シール材、ホース、チューブ、ダイヤフラム、ロールとしても用いることができる。

20

その他の耐薬品性の要求される部位の具体例としては、半導体、液晶バルブ、プラズマディスプレイパネルなどの製造装置における、レジスト現像液、剥離液、ウェハー洗浄液用のＯーリング、シール材、ホース、チューブ、ポンプのダイヤフラム、ウェハー搬送用のロールなどがあげられる。

また、その他の用途として、前記の加硫被膜を形成させて使用するものがある。具体的には以下のような用途を示すことができる。

30

- ・複写機用非粘着耐油ロール、
- ・耐候結氷防止用ウエザーストリップ、
- ・輸液用ゴム栓、
- ・バイアルゴム栓、
- ・離型剤、
- ・非粘着軽搬送ベルト、
- ・自動車エンジンマウントのプレーガスケットの粘着防止被膜、
- ・合成繊維の被覆加工、
- ・パッキング被覆薄層をもつボルト部材または継ぎ手

40

つぎに、本発明を製造例および実施例に基づいてさらに具体的に説明するが、本発明はこれらのみに限定されるものではない。

製造例（Ｅ－ＨＦＰ系エラストマーの製造）

２００リットルの内容積のステンレススチール製オートクレーブに、イオン交換水１００リットル、パーフルオロオクタン酸アンモニウム５ｋｇ、水酸化ナトリウム８０ｇ、リン酸水素２ナトリウム塩１２水和物７８０ｇ、ｔ－ブチルアルコール３．６４ｋｇ、パーブチルＰＶ（ｔ－ブチルパーオキシピバレート７０重量％含有、日本油脂株式会社製）２４３ｇを仕込み、充分窒素で置換した後、真空状態でヘキサフルオロプロピレン（ＨＦＰ）を５４．６ｋｇ仕込み、１５℃に温度調節し、ついで予め混合しておいたエチレン／ＴＦＥ（８７．７／１２．３、モル％）混合モノマー１７６０ｇをオートクレーブの内圧が０

50

・ 85 MPa・G になるまで圧入した。オートクレーブ内を攪拌しながら温度 15℃ で圧力が一定 (0.85 MPa・G) になるまで放置した。温度と圧力が一定になったとき、イオン交換水 3300g に硫酸鉄 (II) 7 水和物 1.17g、エチレンジアミン四酢酸 2 ナトリウム塩 2 水和物 1.37g およびヒドロキシメタンスルフィン酸ナトリウム塩 2 水和物 194g を溶解した水溶液をチッ素ガスでバブリングした後プランジャーポンプにて仕込み反応を開始した。

反応が進行するにしたがって圧力が低下してくるのでその圧力低下をエチレン/TFE (91.7/8.3、モル%) 混合モノマーを追加することにより補い、一定の温度および圧力 (15℃、0.85 MPa・G) にて 42 時間重合反応を行なった。

反応終了後、残存モノマーを大気中に放出し、得られた乳化分散体を塩酸にて凝析し、イオン交換水で洗浄後 120℃ で恒量になるまで乾燥して、エラストマー性の E-HFP-TFE 共重合体を 23.1kg 得た。また、平均重合速度は 5.5g/hr/リットル水であった。

この E-HFP-TFE エラストマーを ¹H-NMR、GPC といった分析法で共重合組成を調べたところ、エチレン 53.9 モル%、HFP 41.0 モル% および TFE 5.1 モル% の共重合体であった。また、ガラス転移温度は +2℃ であり、ムーニー粘度は ML (1+4, 100℃) 143、ML (1+10, 100℃) 132 であった。

実施例 1

製造例で得た E-HFP-TFE エラストマー 100 部にパーオキサイド系加硫剤として t-ブチルパーオキシベンゾエート (パーブチル Z、日本油脂株式会社) 3.7 部、加硫助剤として p, p'-ジベンゾイルキノンジオキシム (バルノック DGM、大内新興化学工業株式会社製) 3.46 部および補強性の小さい充填材としてメタケイ酸カルシウム (NYAD #400、NYCO 社製) 40 部を混合し、オープンロールを用いて常温にて混練し、本発明の組成物を調製した。この組成物はロールへの密着性がよく、混練が容易であった。得られた組成物を金型に入れ、プレス加硫 (150℃×15 分間) により 1 次加硫し、ついでオープン加硫 (180℃×4 時間) により 2 次加硫して加硫物を製造した。併せて 150℃ における加硫特性を調べた。結果を表 1 に示す。

また得られた加硫物の常態物性、発泡の有無および耐熱性をつぎの方法で測定した。結果を表 1 に示す。

(加硫特性)

1 次プレス加硫時に JSR 型キュラストメータ II 型を用いて 150℃ における加硫曲線を求め、最低粘度 (ML)、加硫度 (MH)、誘導時間 (T₁₀) および最適加硫時間 (T₉₀) を求める。

(常態物性)

100% モジュラス (M100)、引張破断強度 (TB) および引張破断伸び (EB) は JIS K6251 (1993) にしたがって、硬度 (Hs) は JIS K6253 (1997) のデュロメータタイプ A にしたがって測定する。

(発泡の有無)

得られた 1 次加硫物の表面を肉眼で観察する。

(耐熱性)

空気中にて 230℃×72 時間曝露後の引張破断強度変化率 (ΔTB)、引張破断伸び変化率 (ΔEB) および硬度変化率 (ΔHs) を測定する。

比較例 1

実施例 1 において、加硫助剤として p, p'-ジベンゾイルキノンジオキシムに代えて TAI C を 2.5 部配合したほかは同様にして組成物を調製し、この組成物について実施例 1 と同様にして加硫特性を調べた。結果を表 1 に示す。

ついで実施例 1 と同様にして 1 次加硫および 2 次加硫し、比較用の加硫物を製造した。この加硫物について実施例 1 と同様にして常態物性、発泡の有無および耐熱性を調べた。結果を表 1 に示す。

表 1

	実施例 1	比較例 1
組成物 (重量部)		
E-HFP系エラストマー	100	100
加硫剤	3.7	3.7
加硫助剤		
ジベンゾイルキノンジオキシム	3.46	—
TAIC	—	2.5
充填材		
NYAD#400	40	40
MTカーボン	—	—
加硫性		
ML	0.35	0.20
MH	3.30	1.60
T10	0.9	0.8
T90	6.0	5.0
発泡の有無	無	有
常態物性		
M100	49	発泡したため 測定せず
TB	133	
EB	360	
Hs (シヨアA)	72	
耐熱性		
ΔTB (%)	-16.7	発泡したため 測定せず
ΔEB (%)	5.6	
ΔHs	1	

実施例 2

製造例で得たE-HFP-TFEエラストマー100部に、パーオキサイド系加硫剤としてパーブチルZ3.7部、加硫助剤としてp, p'-ジベンゾイルキノンジオキシム (バルノックDGM、大内新興化学工業株式会社製) 3.46部および充填材としてMTカーボンブラック (N-990、Cancarb社製) 30部を混合し、オープンロールを用いて常温にて混練し、本発明の組成物を調製した。この組成物はロールへの密着性がよく、混練が容易であった。得られた組成物を金型に入れ、プレス加硫 (150℃×15分間) により1次加硫し、ついでオープン加硫 (180℃×4時間) により2次加硫して加硫物を製造した。併せて150℃における加硫特性を調べた。結果を表2に示す。また得られた加硫物について実施例1と同様にして常態物性、発泡の有無および耐熱性を調べた。結果を表2に示す。

実施例 3

実施例2において、加硫助剤としてp, p'-ジベンゾイルキノンジオキシム3.46部に加えてTAICを1.0部併用したほかは同様にして組成物を調製し、この組成物について実施例1と同様にして加硫特性を調べた。結果を表2に示す。ついで実施例1と同様にして1次加硫および2次加硫し、加硫物を製造した。この加硫物について実施例1と同様にして常態物性、発泡の有無および耐熱性を調べた。結果を表2

に示す。

比較例 2

実施例 2 において、加硫助剤として p, p' - ジベンゾイルキノンジオキシムに代えて T A I C を 2.5 部配合したほかは同様にして組成物を調製し、この組成物について実施例 1 と同様にして加硫特性を調べた。結果を表 2 に示す。

ついで実施例 1 と同様にして 1 次加硫および 2 次加硫し、比較用の加硫物を製造した。この加硫物について実施例 1 と同様にして常態物性、発泡の有無および耐熱性を調べた。結果を表 2 に示す。

表 2

	実施例 2	実施例 3	比較例 2
組成物 (重量部)			
E-HFP 系エラストマー	100	100	100
加硫剤	3.7	3.7	3.7
加硫助剤			
ジベンゾイルキノンジオキシム	3.46	3.46	—
T A I C	—	1.0	2.5
充填材			
NYAD # 400	—	—	—
MT カーボン	30	30	30
加硫性			
ML	0.35	0.40	0.30
MH	3.65	3.50	2.00
T 10	0.9	1.0	0.6
T 90	8.5	9.3	5.5
発泡の有無	無	無	無
常態物性			
M 100	54	70	44
T B	202	224	174
E B	230	210	350
H s (ショア A)	70	72	71
耐熱性			
Δ T B (%)	-13.3	-16.2	-29.2
Δ E B (%)	4.3	9.5	8.6
Δ H s	1	0	-1

産業上の利用可能性

本発明によれば、E-HFP 系エラストマーをパーオキサイド加硫する際の加硫性が顕著に向上した組成物を提供することができる。また、補強性の小さい充填材を配合した処方でも加硫時の発泡現象を抑制することができる。

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/JP02/05577
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl ¹ C08L23/08, C08L27/20, C08K5/53 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int.Cl ¹ C08L23/00-23/36, C08L27/00-27/24, C08K3/00-13/08 Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 10-231386 A (Daikin Industries, Ltd.), 02 September, 1998 (02.09.98), Full description (Family: none)	1-9
A	EP 422960 A2 (Japan Synthetic Rubber Co., Ltd.), 17 April, 1991 (17.04.91), Full description & JP 3-128955 A & US 5206293 A1	1-9
A	JP 2-281062 A (Japan Synthetic Rubber Co., Ltd.), 16 November, 1990 (16.11.90), Full description (Family: none)	1-9
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "Z" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 03 September, 2002 (03.09.02)		Date of mailing of the international search report 17 September, 2002 (17.09.02)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer
Facsimile No.		Telephone No.

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1998)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/JP02/05577
C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 11-246717 A (JSR Corp.), 14 September, 1999 (14.09.99), Full description (Family: none)	1-9
A	JP 10-120826 A (Toyo Tire and Rubber Co., Ltd.), 12 May, 1998 (12.05.98), Full description (Family: none)	1-9
A	JP 9-235416 A (Bridgestone Corp.), 09 September, 1997 (09.09.97), Full description (Family: none)	1-9

国際調査報告		国際出願番号 PCT/JP02/05577
A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))		
Int. Cl ¹ C08L23/08, C08L27/20, C08K5/53		
B. 調査を行った分野		
調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))		
Int. Cl ¹ C08L23/00-23/36, C08L27/00-27/24, C08K3/00-13/08		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの		
国際調査で利用した電子データベース (データベースの名称、調査に利用した用語)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP 10-231386 A (ダイキン工業株式会社) 1998.09.02, 全明細書 (ファミリーなし)	1-9
A	EP 422960 A2 (JAPAN SYNTHETIC RUBBER CO., LTD.) 1991.04.17 全明細書 & JP 3-128955 A & US 5206293 A1	1-9
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願		
の日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日	03.09.02	国際調査報告の発送日
国際調査機関の名称及びびて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号 100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		特許庁審査官 (権限のある職員) 三谷 祥子 電話番号 03-3581-1101 内線 6855

様式PCT/ISA/210 (第2ページ) (1998年7月)

国際調査報告		国際出願番号 PCT/JP02/05577
C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 2-281062 A(日本合成ゴム株式会社)1990.11.16 , 全明細書 (ファミリーなし)	1-9
A	JP 11-246717 A(ジェイエスアール株式会社)1999.09.14 , 全明細書 (ファミリーなし)	1-9
A	JP 10-120826 A(東洋ゴム工業株式会社)1998.05.12 , 全明細書 (ファミリーなし)	1-9
A	JP 9-235416 A(株式会社ブリジストン)1997.09.09 , 全明細書 (ファミリーなし)	1-9

フロントページの続き

(51)Int.Cl.⁷

C O 8 L 27/20

F I

C O 8 L 27/20

(72)発明者 森川 達也

大阪府摂津市西一津屋1番1号 ダイキン工業株式会社淀川製作所内

(72)発明者 大谷 充宏

大阪府摂津市西一津屋1番1号 ダイキン工業株式会社淀川製作所内

(注) この公表は、国際事務局(W I P O)により国際公開された公報を基に作成したものである。なおこの公表に係る日本語特許出願(日本語実用新案登録出願)の国際公開の効果は、特許法第184条の10第1項(実用新案法第48条の13第2項)により生ずるものであり、本掲載とは関係ありません。